



<p>(51) 国際特許分類6 H01M 8/02, C09J 183/05, 4/00, C09K 3/10</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO99/53559</p> <p>(43) 国際公開日 1999年10月21日(21.10.99)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT/JP99/01730</p> <p>(22) 国際出願日 1999年4月1日(01.04.99)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平10/101633 1998年4月14日(14.04.98) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 株式会社 スリーボンド(THREE BOND CO., LTD.)(JP/JP) 〒193-8533 東京都八王子市狭間町1456番地 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 足立 守(ADACHI, Mamoru)(JP/JP) 〒190-0032 東京都八王子市石川町2951-10 スリーボンド八王子寮 Tokyo, (JP)</p>		<p>(81) 指定国 CA, GB, JP, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書 補正書・説明書</p>
<p>(54) Title: SEALING MATERIAL FOR FUEL CELL</p> <p>(54) 発明の名称 燃料電池用のシール剤</p> <p>(57) Abstract A liquid resin composition (26) comprising (A) an addition-polymerizable oligomer in which the backbone has a linear polyisobutylene or perfluoropolyether structure and has an alkenyl group at least at each end, (B) a hardener containing per molecule at least two hydrogen atoms each bonded to a silicon atom, and (C) a hydrosilylation catalyst is three-dimensionally crosslinked to form a sealing layer in each cell (20) of a fuel cell assembly to thereby seal separators (24) and (25), a pair of electrodes (22) and (23), and an ion-exchange resin (21) as a solid electrolyte. Thus, each cell can be reduced in thickness and size to enable the fuel cell assembly to have a high output.</p> <div data-bbox="966 1207 1404 1879"> <p>The diagram illustrates a fuel cell assembly (20) in a cross-sectional view. It features a central sealing layer (26) which is sandwiched between two electrodes (22 and 23) and two separators (24 and 25). The entire assembly is enclosed within a rectangular frame. Arrows point to the various components: 20 for the overall assembly, 25 and 23 for the top electrodes/separators, 21 for the central electrolyte/sealing layer, 22 and 24 for the bottom electrodes/separators, 25a and 24a for the side components, and 26 for the bottom sealing layer.</p> </div>		

(57)要約

燃料電池の単セル（20）のセパレーター（24）（25）と一対の電極（22）（23）と固体電解質のイオン交換樹脂（21）とのシールを、A）分子中の主鎖は直鎖状のポリイソブチレン構造もしくはパーフルオロポリエーテル構造であって、少なくともその両端にアルケニル基を有する付加重合性オリゴマー、B）分子中に少なくとも珪素原子に結合した水素原子を少なくとも2個以上を含有する硬化剤と、C）ヒドロシリル化反応触媒からなる液状樹脂組成物（26）を三次元架橋させてシール層を形成させて、前記単セルの薄型化および小型化を図り、燃料電池の高出力を可能する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	EE	エストニア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LS	レソト	SK	スロヴァキア
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BE	ベルギー	GE	グルジア	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MA	モロッコ	TD	チャード
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BJ	ベナン	GN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GW	ギニア・ビサウ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
BY	ベラルーシ	HR	クロアチア	MK	マケドニア共和国	TM	トルクメニスタン
CA	カナダ	HU	ハンガリー	ML	マリ	TR	トルコ
CF	中央アフリカ	ID	インドネシア	MN	モンゴル	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	IE	アイルランド	MR	モーリタニア	UA	ウクライナ
CH	スイス	IL	イスラエル	MW	マラウイ	UG	ウガンダ
CI	コートジボワール	IN	インド	MX	メキシコ	US	米国
CM	カメルーン	IS	アイスランド	NE	ニジェール	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IT	イタリア	NL	オランダ	VN	ヴェトナム
CR	コスタ・リカ	JP	日本	NO	ノルウェー	YU	ユーゴスラビア
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド	ZA	南アフリカ共和国
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド	ZW	ジンバブエ
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

明細書

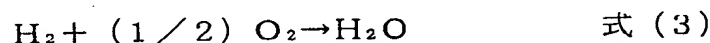
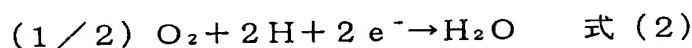
燃料電池用のシール剤

技術分野

5 本発明は、燃料電池の単セルにおいてセパレーターと一対の電極と固体電解質のイオン交換樹脂膜との接合面で、三次元架橋してガス低透過性の弾性体のシール層を形成してこれら部品間での完全な気密を行うことができる液状樹脂組成物のシール剤に関する。

背景技術

10 燃料電池とは、燃料がもっているエネルギーを直接的に電気エネルギーに変換する装置のことをいい、例えば、水素を含む燃料ガスをアノードに供給し、酸素を含む酸化ガスをカソードに供給して、両極で起こる電気化学反応によって起電力を得ることができる。この電気化学反応は、アノードにおける式(1)の反
15 応、カソードにおける式(2)の反応、電池全体で起こる式(3)の反応によって示すことができる。



20 燃料電池の一般的な形態は、固体電解質膜を挟んで一対の電極を配し、アノード電極に水素を含む燃料ガスを、カソード電極には酸素を含む酸化ガスを別々に隔離して供給する。しかし、隔離が不十分で一方のガスが他方のガスと混合すると、発電効率の低下を起こしてしまう。

25 一般に、燃料電池は一対の電極を基本単位とする単セルを積層したスタック構造にとっている。単セルでは、一対の電極が固体電解質膜を挟持したサンドイッチ構造を形成し、さらにガス不透過なセパレーターがこのサンドイッチ構造体を挟持する。

セパレーターは隣接する単セル間でのガスの混合を防止する働きをする。固体電解質膜は単セル内に供給される燃料ガスと酸化ガスを隔離する役割をする。

従来の気密方法として、セパレーターの端部に溝を設けこの溝にＯリングを設置して固体電解質膜の両側に供給される各ガスの混合を防止する技術の特開平６－１１９９３０号公報、特開平６－６８８８４号公報で開示している。

5 小型の燃料電池に使用される固体電解質として、イオン交換樹脂膜が使用されている。このイオン交換樹脂膜は湿潤状態で電気伝導性の挙動をするので、作動中の燃料電池のセル内に水分を供給して、イオン交換樹脂膜の湿潤状態が保持されている。つまり、イオン交換樹脂膜は燃料ガスと酸化ガスとを隔離する機能と、湿潤状態を保持する機能の２つの機能をもっていなければならない。このような機能をもつ好ましいイオン交換樹脂膜として、フッ素系樹脂のイオン交換樹脂膜
10 がある。

前述の Ｏ リングに代えて、接着剤でこれらを気密する技術が特開平７－２４
9 4 1 7 号公報に開示され、イオン交換樹脂膜を熱圧着させる技術が特開平６－
1 1 9 9 2 8 号公報に開示されている。しかし、フッ素系樹脂の当該膜は一般に
接着力が非常に低く、これらの技術では確実な気密を得られなかった。

15 そこで、エポキシ樹脂系接着剤を用いて接着をする場合において、イオン交換樹脂膜の接合面を予めイオン交換処理してその接着性を改善する技術が特開平
9－１９９１４５号公報に開示されている。しかし、この前処理によって接着力は向上するが電気伝導性は低下してしまい、燃料電池の起電力は低下する。

20 ヒドロシリル化反応で付加重合するシール剤組成物については、特開平８－２
6 9 3 1 7 号公報においてパーフルオロポリエーテル系組成物が、特開平６－２
7 9 6 9 1 号においてポリイソブチレン系組成物がそれぞれ開示されている。

発明の開示

25 燃料電池の各構成要素が薄膜化されて単セルが薄くなれば、僅かなスペースで
より多くの単セルを積層すると、燃料電池の高出力化を図ることができる。しか
し、Ｏリングでセパレーターとイオン交換樹脂膜とを気密する場合では、セパ
レーターにはＯリング溝を設置するための厚みが必要となり、燃料電池の薄型化と
高出力化に対しては障害となる。さらに、Ｏリングによる締め付け力でイオン交
換樹脂膜を圧縮しなければ気密効果は発揮されないので、当該膜の寸法はＯリン

グ溝より必ず大きくしなければならい。

逆に、電極の近接箇所をＯリングで締め付けることはできない。なぜなら、ガスが電極自体の中を拡散できるように電極は多孔質体であって非常に脆弱な材質になっているので、Ｏリングで強く締め付けると電極が壊れるからである。

5 結局、Ｏリングによる気密方法はイオン交換樹脂膜の面積を大きくする必要があり、燃料電池の小型化を妨げている。また、イオン交換樹脂膜は非常に高価であり、セパレーターのＯリング溝の切削加工もコストがかかり、燃料電池全体のコストが高くなってしまう。

10 次にエポキシ樹脂系接着剤を用いる気密する方法では、イオン交換樹脂膜の接合面を事前にイオン交換処理をして接着力を向上させる前処理が必要となる。さらにエポキシ樹脂からの塩素イオン等の不純物イオンの溶出も問題となる。当該膜がエポキシ樹脂から溶出した不純物イオンで汚染されると、当該膜の電気伝導性の低下により単セルの起電力の低下する結果、単セルを直列に積層したスタック構造の燃料電池全体の総起電力も低下する。

15 同様にイオン交換樹脂膜を熱圧着して接合する場合も、当該膜に予めイオン交換処理を行う必要があり、前述の同じ問題が生じる。また、熱圧着はイオン交換樹脂膜を損傷させやすく、損傷した当該膜は燃料電池の運転時の内圧差によって電氣的短絡する恐れがある。

20 Ｏリングまたはエポキシ樹脂系接着剤でシールを行った燃料電池の気密性は前述の理由により不完全のため、自動車などに搭載して使用する場合は運行時の振動によりガス洩れを起こしやすい。

25 本発明のシール剤により、単セルのイオン交換樹脂膜の面積を最小限にしてかつ薄膜化を実現する結果、燃料電池の小型化と起電力の低下防止を可能にする。さらには、本発明はシール剤を使用すると、イオン交換樹脂膜、セパレーター、一対の電極との接合面に弾性体のシール層を形成し、信頼性の高い気密性を発揮させるとともに当該膜の湿潤状態の維持を確実に行うことができる。

イオン交換樹脂膜を用いた燃料電池の製造において本発明のシール剤を使用すれば、当該膜への接着性を改善するためのイオン交換処理などの前処理またはＯリングなどの別のシール部材が不要となる。また、エポキシ樹脂系接着剤から溶

出してくる不純物イオンによる当該膜への汚染の問題もない。

つまり、従来の技術に比べ、イオン交換樹脂膜をセパレーターまたは一対の電極と確実に接着および気密させることができ、Ｏリングの方式に比べ薄型化および小型化が可能になり、エポキシ樹脂系接着剤方式に比べ、接着性を向上させるための前処理を不要にして作業工程の短縮化およびコストの低減が可能となる。

本発明のシール剤は、a) ガスの透過率が非常に低い、b) イオン交換樹脂膜との密着性・接着性が優れている、c) 硬化後の不純物イオンの溶出が非常に少ない、d) 透湿率が低い、等の特徴を持っているため、イオン交換樹脂膜の性能低下を招くことなく、当該膜をセパレーターまたは一対の電極と確実に接着および気密ができる。

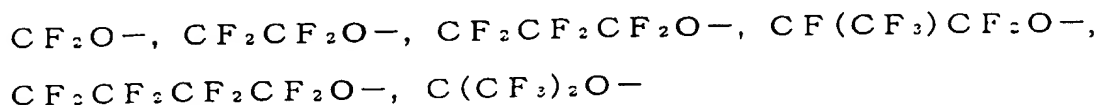
本発明においては、セパレーターまたは一対の電極は、イオン交換樹脂膜との接合面が粗面化されている方がよい。粗面化された凹凸の内部に入り込んだシール剤のの接着面積が大きくなることで、より一層強固な接着力が得られるからである。

本発明のシール剤は、ガス低透過性でかつ反応性の液状樹脂組成物であって、単セルのセパレーターと一対の電極と固体電解質のイオン交換樹脂膜との接合面への塗布後に三次元架橋して前記部品間を気密するものである。当該シール剤は、分子中の主鎖は直鎖状のポリイソブチレン構造もしくはパーフルオロポリエーテル構造のいずれかであって、少なくともその両端にアルケニル基を有する付加重合性オリゴマーと、B) 分子中に少なくとも珪素原子に結合した水素原子を少なくとも２個以上を含有する硬化剤と、C) ヒドロシリル化反応触媒とからなる。

前記A) の付加重合性オリゴマーの２種類のうちの一つは、分子中の主鎖が直鎖状のポリイソブチレン構造であって少なくともその両端に反応基を有するものであって、好ましくはその分子量が５００～１０００００であって、イソブチレンに起因する繰り返し単位の総量が５０重量%以上である。当該付加重合性オリゴマーは、全てイソブチレン単位で構成されていてもよいし、一分子中の５０重量%以下でポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィンまたはポリブタジエン、ポリイソプレンなどのポリジエンの共重合体であってもよい。

前記A) の付加重合性オリゴマーのうちのも一種類は、分子中の主鎖が直鎖状

のパーフルオロポリエーテル構造であって少なくともその両端に反応基を有するものであって、以下の構造の繰り返し単位が3～400のものである。



5 このようなパーフルオロポリエーテル構造の付加重合性オリゴマーの粘度は、
25～1,000,000 mm²/s の範囲となる。

前記B)の硬化剤とは、分子中に少なくとも珪素原子に結合した水素原子を少なくとも2個以上を含有するものであれば特に限定するものでない。しかし、硬化剤自体もガス低過性であって、付加重合性オリゴマーと相溶しやすい物質が好ましい。つまり、付加重合性オリゴマーの主鎖がポリイソブチレン構造の場合では硬化剤の主鎖もポリイソブチレン構造が好ましく、付加重合性オリゴマーの主鎖がパーフルオロポリエーテル構造の場合では硬化剤の主鎖もパーフルオロポリエーテル構造が最も好ましい組み合わせである。

15 なお、硬化剤中のヒドロシシル基は、付加重合性オリゴマーのアルケニル基1モルに対しヒドロシシル基が0.5～5モルとする量が好ましい。また硬化剤の分子量は100～30000の範囲が好ましい。

前記C)のヒドロシリル化反応触媒とは、一般に使われる白金、チタン、パラジウム、ロジウムなどの塩化物であればよい。好ましい触媒の具体例としては、塩化白金、白金-ビニルシロキサン錯体、白金-ホスフィン錯体、白金-ホスファイト錯体、白金-アルコラート錯体、白金-オレフィン錯体などを挙げることができる。

本発明シール剤は、必要に応じて充填材、体質顔料、老化防止剤、界面活性剤等の周知材料を、不純物やイオンの溶出が問題とならない程度で添加しても良い。

25 本発明のシール剤の使用方法は、セパレータと一対の電極と固体電解質のイオン交換樹脂の接合面に液状状態でシール剤を塗布し単セルを組み立てた後に、加熱または常温放置で当該シール剤を三次元架橋させて、前記接合面に当該シール剤の弾性シール層を形成させる。このようにして製造された単セルを、前記の架橋工程における固定のための締め付け力より大きい圧縮力を加えて、複数の単セルを積層してスタック構造にする。付加重合により架橋した当該シール剤は若干

の硬化収縮が生じるため、スタック構造にする際に圧縮しながら積層することでその気密性を高めることができるからである。

図面の簡単な説明

Fig 1 は、燃料電池の単セルの断面図である。

図中において、(21) はイオン硬化樹脂膜、(22) はアノード電極、(23) はカソード電極、(24) および (25) はセパレーター、(24 a) は燃料ガス流路、(25 a) は酸化ガス流路を示す。(26) が本発明のシール剤である。

以下本発明の実施の形態を実施例に基づき説明すると、燃料電池は単セルを積層したスタック構造になっている。Fig 1 はこの単セル (20) の断面を模式的に示したものである。燃料電池の基本単位である単セル (20) は、イオン交換樹脂膜 (21) と、アノード (22) およびカソード (23) と、セパレーター (24) と (25) とから成っている。

アノード (22) とカソード (23) はイオン交換樹脂膜 (21) を挟持し、セパレーター (24) と (25) は、これらを更に両側から挟み込む構造となっている。アノード (22) とカソード (23) の表面に、燃料ガスおよび酸化ガスの流路が形成されている。アノード (22) とセパレーター (24) の間に燃料ガス流路 (24 a)、カソード (23) とセパレーター (25) との間には酸化ガス流路 (25 a) が形成されている。

セパレーター (24)、(25) は、電極間でガス流路を形成し、且つ隣接する単セル間での燃料ガスと酸化ガスを分離する役割を担っている。

イオン交換樹脂膜 (21) は、固体電界質でフッ素系樹脂により形成されたイオン伝導性のイオン交換膜であり、湿潤状態で電気伝導性の挙動を示す。本発明の中の実験では商品面；ナフィオン（デュポン社製）を使用した。

アノード (22) およびカソード (23) は、両者とも炭素繊維系で織成したカーボクロスに形成されており、イオン交換樹脂膜 (21) とは 120～130℃で加熱圧着されている。

発明を実施するための最良の形態

本発明のシール剤を使用して、アノード（２２）、カソード（２３）の一对の電極、セパレーター（２４）、（２５）とイオン交換樹脂膜（２１）との接合について説明する。

実施例の１で使用するシール剤（２６）は、付加重合オリゴマーおよび硬化剤の双方の主鎖がパーフルオロポリエーテルである加熱硬化型シール剤（商品名；
Three Bond 11X-058、スリーボンド社製）である。アノード（２２）を取り付けたセパレーター（２４）、およびカソード（２３）を取り付けたセパレーター（２５）の各接合面に、当該シール剤（２６）を塗布し、前記セパレーター（２４）、（２５）を所定位置で係合させて単セル（２０）を組み立てると、イオン交換樹脂膜（２１）を覆って未架橋の液状状態のシール層が形成される。

イオン硬化樹脂膜（２１）は、材料によっては１５０℃以上で熱的な処理を行うと膜の性質が変化し疎水性が強くなり導電性が低下するので、前記単セル（２０）を１００℃以下で加熱してイオン交換樹脂膜（２１）が熱によるダメージを受けることなく、未架橋シール層を三次元架橋させて弾性体のシール層を形成することができた。

使用した当該シール剤（２６）の特性は、Ａ）分子中に少なくとも２個のアルケニル基を有し、且つ主鎖にパーフルオロポリエーテル構造を有し、２５℃における粘度が１０，０００～１，０００，０００ mm^2/s である付加重合性オリゴマー、Ｂ）分子中に少なくとも珪素原子に結合した水素原子を少なくとも２個以上を含有し、かつ主鎖にパーフルオロポリエーテル構造を有し、２５℃の粘度が１０，０００～５００，０００ mm^2/s である硬化剤、Ｃ）触媒量の白金族化合物を含有し、且つＡ）の付加重合性オリゴマー中のアルケニル基１モルに対しヒドロシリル基が０．５～５モルとする量でＢ）の硬化剤を配合した液状樹脂組成物である。

当該シール剤は以下の性質を持つ。

１）８０～１５０℃の温度範囲において３０～６０分で架橋し、得られるゴム弾性体は優れた伸びを有する。

２）架橋後のシール剤は、燃料ガスおよび酸化ガスに対し優れたガスバリア性を

有する。

- 3) 架橋後のシール剤の透湿性は低い。
- 4) 架橋後のシール剤から溶出する不純物イオンは極めて少ない。
- 5) 架橋後のシール剤はメタノールなどに対し優れた耐性を有する。
- 5 6) 架橋後のシール剤はフッ素樹脂系のイオン交換性樹脂膜に対しても優れた密着性を有する。

実施例 2 では、前述のシール剤 11X-058 を付加重合オリゴマーおよび硬化剤の双方の主鎖がイソブチレン構造である加熱硬化型シール剤（商品名；Th
ree Bond 11X-066、スリーボンド社製）に代えて、同様な操作で単
10 セル（20）を製作した。

使用した当該シール剤の 11X-066 の特性は、A) 分子中に少なくとも 2
個のアルケニル基を有し、且つ主鎖にポイソブチレン構造を有し、25℃におけ
る粘度が 25~100, 000 mm²/s である付加重合性オリゴマー、B) 分
子中に少なくとも珪素原子に結合した水素原子を少なくとも 2 個以上を含有し、
15 かつ主鎖にパーフルオロポリエーテル構造を有し、25℃の粘度が 10~10,
000 mm²/s である硬化剤、C) 触媒量の白金族化合物を含有し、且つ A)
の付加重合性オリゴマー中のアルケニル基 1 モルに対しヒドロシル基が 0.5
~5 モルとする量で B) の硬化剤を配合した液状樹脂組成物である。

当該シール剤は以下の性質を持つ。

- 20 1) 70~100℃の温度範囲において 20~60 分で架橋し、得られるゲル状物質は極めて優れた伸びを有する。
- 2) 架橋後のシール剤は、燃料ガスおよび酸化ガスに対し優れたガスバリア性を有する。
- 3) 架橋後のシール剤の透湿性は低い。
- 4) 架橋後のシール剤から溶出する不純物イオンは極めて少ない。
- 25 5) シール剤の粘度が低く、塗布作業が容易である。
- 6) 架橋後のシール剤はイオン交換樹脂膜に対し優れた密着性を有する。

比較のために、従来の 2 種類のシール剤で単セルを製作した。一つは、本発明
のシール剤（26）に代えて RTV シリコーン（商品名；Th
ree Bond 1

220D、スリーボンド社製）を使用して、25℃、55%RHで7日間の硬化条件で単セル（20）を製作した。他の一つは、1液性加熱硬化型エポキシ樹脂（商品名；ThreeBond2282、スリーボンド社製）を使用して、100℃、60分の硬化条件で単セル（20）を製作した。

5 本発明のシール剤を使用した実施例1及び実施例2の両方とも、燃料ガス、酸化ガスとの気密および単セル内の湿潤状態を保つことができた。比較例の前記RTVシリコーンを使用した単セルでは、単セル内の湿潤状態を十分に保つことができなかった。一方の比較例である前記加熱硬化型エポキシ樹脂を使用した単セルでは、シールおよび湿潤状態の維持していたが、イオン交換樹脂膜（21）は
10 不純物イオンの溶出による変色が観察された。

運転終了後に単セル（20）を分解する際に、実施例1の11X-058および実施例2の11X-066を用いた単セルでは、イオン交換樹脂膜（21）に対する接着力が良好で凝集破壊をした。一方、比較例の前記RTVシリコーンおよび前記1液性加熱硬化型エポキシ樹脂を用いた単セルは界面剥離をした。

15 上記実施例1、実施例2においては、イオン交換質樹脂膜の膜厚は100μmで行った。一般に、より薄膜のイオン交換樹脂膜の方が導電性の向上をもたらし、単セルの性能向上に寄与すると云われている。そこで、膜厚50μmのイオン交換樹脂膜についても、前記シール剤の11X-057および11X-066で単セルを製作し、前記実施例1及び実施例2と同様な試験を行い、同様な作用効果を奏することを確認した。

20 イオン交換樹脂膜を熱圧着する方法では、当該膜を損傷させるケースが多く、通常は膜厚300μmのイオン交換樹脂膜が用いられ、膜厚100μmの膜は用いられることはなかった。なぜなら、損傷した当該膜は、燃料電池の作動中に電氣的短絡を起こす危険性があるからである。

25 本発明のシール剤は、イオン交換樹脂膜（21）とセパレーター（24）、（25）との間に弾性体のシール剤層を形成することから、熱圧着または燃料電池の作動中においてイオン交換樹脂膜（21）を損傷させることなく、電氣的短絡を防ぐことができる。

産業上の利用可能性

5 以上説明したとおり、本発明のシール剤を用いた燃料電池は、イオン交換樹脂膜とセパレータの固着において、当該イオン交換樹脂膜に前処理を施す必要がなく、運転時の湿潤状態を保ち、燃料ガスと酸化ガスとを隔離して気密することができる。従って、自動車用の燃料電池を考慮した場合、振動等動きに対し良好なシール性能を発揮することができる。また、2 mm程度の所定の厚みを有するOリングを組み込む必要がないので燃料電池10全体の薄型化を図ることができ、積層する単セル数を増やすことによって電池容量を増大させることが可能となる。加えて、本発明で用いた接着剤は機械による自動塗布が可能であり、作業上の短縮化、効率化、コストの低減を図ることも可能である。

10 本発明のシール剤は、固体電解質であるイオン交換樹脂膜をイオン種で汚染されることなく接着およびシールすることができるので、Oリングを不要にして燃料電池の小型化または薄膜化を可能にすることができる。また、当該シール剤はガス不透過性を有するのでイオン交換樹脂膜とセパレーター体とのガス密封性に優れ、電解質膜の湿潤状態の維持できる。

15 その結果、本発明のシール剤でイオン交換樹脂膜とセパレーターと一対の電極とを接着および気密した燃料電池は、薄い小型で起電力の高い性能をもつことで、かつ振動に対しても耐性をもち、自動車用の燃料電池としての用途に適している。

請求の範囲

1. 燃料電池の単セル(20)のセパレーター(24)(25)と一対の電極(22)(23)と固体電解質のイオン交換樹脂膜(21)とをガス低透過性でかつ反応性の液状樹脂組成物(26)を三次元架橋させてシールする場合において、
- 5 当該樹脂組成物が、A)分子中の主鎖は直鎖状のポリイソブチレン構造もしくはパーフルオロポリエーテル構造であって、少なくともその両端にアルケニル基を有する付加重合性オリゴマー、B)分子中に少なくとも珪素原子に結合した水素原子を少なくとも2個以上を含有する硬化剤と、C)ヒドロシリル化反応触媒からなる、付加重合で三次元架橋することを特徴とする燃料電池用のシール剤。
- 10 2. 前記A)の付加重合性オリゴマーの主鎖がポリイソブチレン構造の場合にあっては、前記B)の硬化剤の主鎖がポリイソブレン構造であることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用のシール剤。
3. 前記A)の付加重合性オリゴマーの主鎖がパーフルオロポリエーテル構造の場合にあっては、前記B)の硬化剤の主鎖がパーフルオロポリエーテル構造である
- 15 ることを特徴とする請求項1に記載の燃料電池用のシール剤。

20

25

補正書の請求の範囲

[1999年9月13日(13.09.99)国際事務局受理:出願当初の請求の範囲1,2及び3は補正された請求の範囲1,2及び3に置き換えられた。(1頁)]

1.(補正後) 燃料電池の単セル(20)のセパレーター(24)(25)と一対の電極(22)(23)と固体電解質のイオン交換樹脂膜(21)とをガス低透過性でかつ反応性の液状樹脂組成物(26)を三次元架橋させてシールする場合において、当該樹脂組成物が、A)分子中の主鎖は直鎖状のポリイソブチレン構造もしくはパーフルオロポリエーテル構造であって、少なくともその両端にアルケニル基を有する付加重合性オリゴマー、B)分子中に少なくとも珪素原子に結合した水素原子を少なくとも2個以上を含有する硬化剤と、C)ヒドロシリル化反応触媒からなるシール剤組成物を付加重合で三次元架橋させて、当該固体電解質のイオン交換樹脂(21)を当該セパレーター(24)(25)または当該一対の電極(22)(23)と接着させることを特徴とする燃料電池用のシール方法。

2.(補正後) 前記A)の付加重合性オリゴマーの主鎖がポリイソブチレン構造の場合にあつては、前記B)の硬化剤の主鎖がポリイソブレン構造であることを特徴とする請求項1に記載のシール方法に使用する燃料電池用のシール剤。

3.(補正後) 前記A)の付加重合性オリゴマーの主鎖がパーフルオロポリエーテル構造の場合にあつては、前記B)の硬化剤の主鎖がパーフルオロポリエーテル構造であることを特徴とする請求項1に記載のシール方法に使用する燃料電池用のシール剤。

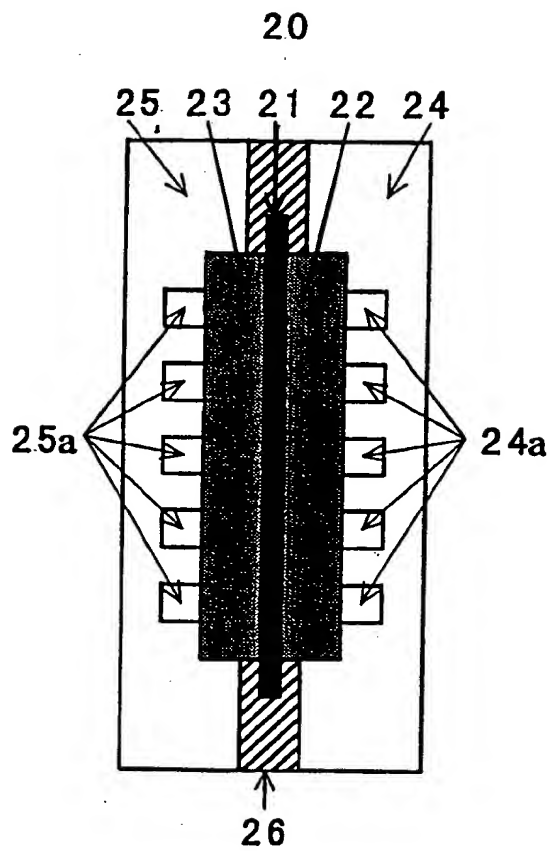
条約19条(1)に基づく説明書

請求の範囲第1項は、付加重合性オリゴマーからなるシール剤で、固体電解質のイオン交換樹脂(21)をセパレーター(24)(25)または電極(22)(23)とを接着して燃料電池の気密を行うシール方法であることを明確にした。

引用例のJP7-502374は、電極の多孔質板の縁部に樹脂を含浸して多孔質板自体のシールにより燃料電池の気密を行うシール方法である。

本発明は、イオン交換樹脂膜の表面からの燃料ガスが洩れるという課題を解決することを特徴とする。

Fig. 1



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/01730

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁶ H01M8/02, C09J183/05, 4/00, C09K3/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁶ H01M8/00-8/24

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-1999
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-1999	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-1999

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 7-502374, A (International Fuel Cells Corp.), 9 March, 1995 (09. 03. 95), Claim 1 ; page 3, upper right column, lines 4 to 22 & US, 5219674, A & WO, 9313567, A1 & EP, 619045, A1	1-3
Y	JP, 8-269317, A (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.), 15 October, 1996 (15. 10. 96), Claims ; Par. No. [0059] (Family: none)	1-2
Y	JP, 6-279691, A (Kaneka Corp.), 4 October, 1994 (04. 10. 94), Claims ; Par. No. [0092] (Family: none)	1, 3
A	JP, 7-220941, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 18 August, 1995 (18. 08. 95), Claims (Family: none)	1-3

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
29 June, 1999 (29. 06. 99)Date of mailing of the international search report
21 July, 1999 (21. 07. 99)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁸ H01M 8/02,
C09J 183/05, 4/00,
C09K 3/10

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl.⁸ H01M 8/00 - 8/24

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996
日本国公開実用新案公報 1971-1999
日本国登録実用新案公報 1994-1999
日本国実用新案登録公報 1996-1999

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	J P, 7-502374, A (インターナショナル・フューエル・セルズ・コーポレーション), 09. 3月. 1995 (09. 03. 95), 特許請求の範囲請求項1、第3頁上右欄第4-22行&US, 5219674, A&WO, 9313567, A1&EP, 619045, A1	1-3
Y	J P, 8-269317, A (信越化学工業株式会社), 15. 10月. 1996 (15. 10. 96), 特許請求の範囲、【0059】 (ファミリーなし)	1-2
Y	J P, 6-279691, A (鐘淵化学工業株式会社), 04. 10月. 1994 (04. 10. 94), 特許請求の範囲、【009	1, 3

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

29. 06. 99

国際調査報告の発送日

21.07.99

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号 100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
榊原 貴子

電話番号 03-3581-1101 内線 3435

4 X 3435

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	2】 (ファミリーなし) J P, 7-220941, A (旭硝子株式会社), 18. 8月. 1 995 (18. 08. 95), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-3